

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 03-264653

(43)Date of publication of application : 25.11.1991

(51)Int.Cl. C22C 38/00
C22C 19/03
C22C 19/07
C22C 22/00
C22C 33/02
H01F 1/08

(21)Application number : 02-061719

(71)Applicant : HITACHI METALS LTD

(22)Date of filing : 13.03.1990

(72)Inventor : ENDO MINORU
NAKAMURA KEISUKE

(54) SINTERED MAGNET ALLOY AND PRODUCTION THEREOF

(57)Abstract:

PURPOSE: To produce the sintered magnet alloy having a high coercive force by mixing the fine powder of an alloy consisting of Mn, B, Si, etc., and alloy powder consisting of Ce, Mn, B, Ti, etc., at a specific ratio and sintering the mixture.

CONSTITUTION: The fine powder (about submicron) of the alloy consisting of TM_xBySiz (TM is at least one kind among Mn, Fe, Co, and Ni, $0.5 \leq x \leq 0.9$, $0.1 \leq y \leq 0.5$, $0 \leq z \leq 0.2$) and the alloy powder (about 2 to 6μ) consisting of $RaTMbBcMd$ (R is at least one kind among Ce, Pr, Nd, Tb, and Dy; TM is at least one kind among Mn, Fe, Co, and Ni; M is at least one kind among Ti, V, Cu, Ga, Zr, Nb, Mo, Hf, Ta, W; $0.12 \leq a \leq 0.4$, $0.4 \leq b \leq 0.8$, $0 \leq c \leq 0.25$, $0 \leq d \leq 0.08$) are mixed at 1:(0.03 to 0.5) ratio by weight and the mixture is sintered. The sintered magnet alloy which is improved in Curie point and ther mal stability is obt'd. in this way.

LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

⑫ 公開特許公報(A)

平3-264653

⑬ Int. Cl.⁵

C 22 C 38/00
19/03
19/07
22/00
33/02
H 01 F 1/08

識別記号

3 0 3

庁内整理番号

D 7047-4K
D 8928-4K
E 8928-4K
8520-4K
H 7619-4K
B 6781-5E

⑭ 公開 平成3年(1991)11月25日

審査請求 未請求 請求項の数 2 (全5頁)

⑮ 発明の名称 焼結磁石合金及びその製造方法

⑯ 特 願 平2-61719

⑰ 出 願 平2(1990)3月13日

⑱ 発 明 者 遠 藤 実 埼玉県熊谷市三ヶ尻5200番地 日立金属株式会社磁性材料
研究所内

⑲ 発 明 者 中 村 啓 介 埼玉県熊谷市三ヶ尻5200番地 日立金属株式会社磁性材料
研究所内

⑳ 出 願 人 日立金属株式会社 東京都千代田区丸の内2丁目1番2号

明細書

1. 発明の名称 焼結磁石合金及びその製造方法

2. 特許請求の範囲

(1) TMをMn, Fe, Co, Niのうち少なくとも1種、RをCe, Pr, Nd, Tb, Dyのうち少なくとも1種とするとき、

(TM, Si)₂B, (TM, Si)₂B, TM-Si型相がR-TM, R-TM-B相により取り囲まれた組織を有することを特徴とする焼結磁石合金。

(2) TM_xBySiz (但し、TMはMn, Fe, Co, Niのうち少なくとも1種、0.5 ≤ x ≤ 0.9, 0.1 ≤ y ≤ 0.5, 0 ≤ z ≤ 0.2) から成る合金粉とRaTmbBcMd (但し、RはCe, Pr, Nd, Tb, Dyのうち少なくとも1種、TMはMn, Fe, Co, Niのうち少なくとも1種、MはTi, V, Cu, Ga, Zr, Nb, Mo, Hf, Ta, Wのうち少なくとも1種、0.12 ≤ a ≤ 0.4, 0.4 ≤ b ≤ 0.8, 0 ≤ c ≤ 0.25, 0 ≤ d ≤ 0.08) から成る合

~~5. 5. 0.25, 0 ≤ d ≤ 0.08) から成る合~~
金粉を重量比で1: (0.03 ~ 0.5) の割合で混合し、焼結することを特徴とする焼結磁石の製造方法。

3. 発明の詳細な説明

〔産業上の利用分野〕

本発明は、Fe₂BもしくはFe₂Bを主相として、その粒界にR-Fe及びR-Fe-B相を存在させ、保磁力を発生せしめた新規な焼結磁石合金に関するものである。

〔従来の技術〕

R-Fe-B系永久磁石はSm-Co系と比較して磁石特性に優れ、高価なSm, Coを必須成分としない安価な工業材料である。

R-GE-B系焼結磁石に関しては特公昭63-65742号公報において、希土類元素R (Nd, Pr, Tb, Dy, Ho, La, Ce, Gd, Y) = 8 ~ 30%, B = 2 ~ 28%, 残部Feの組成でフェライト磁石を越える磁気特性が得られている。

また、R-Fe-B系合金の液体急冷法に関しては、特開昭59-64739号公報において、希土類元素R(Nd, Pr)=10~50%、B=0.5~10%、残部Feの組成から成り、高い固有保磁力とエネルギー積が得られることが報告されている。

上記R-Fe-B系永久磁石には、キュリー温度が低く、熱安定性・耐食性が悪いという欠点を有している。

このキュリー温度を改善する試みとしては、特開昭59-64733号公報において、Coを添加することにより500℃を超えるキュリー温度が得られることが報告されている。また、主相をFe₂B、第2相をNd₂Fe₁₄Bとし、キュリー温度が工場した永久磁石が報告されている。(R. H.J. Buschow, 9th International Workshop on Rare Earth Magnets and their Application, p.453, (1987)) Nd_{3.8}Fe_{77.0}B_{19.2}合金を液体急冷することにより、約3kOeの固有保磁力が得られている。また、特開昭63-169357

号公報において、B₂₅~35Nd₅Nb_{2.5}(Fe_{0.7}Co_{0.3})balの組成で10kOe以上の固有保磁力が得られることが報告されている。この高保磁力の原因は正方晶(Fe, Co)2B型相の存在によるものと考えられている。

(発明が解決しようとする問題点)

しかし、上記Fe₂BもしくはFe₂Bを主相とする永久磁石は、前記特開昭63-169357号公報の実施例に示される様に現実には液体急冷法により作成されるため、等方的な磁気特性を有する。このため、磁気特性が低く、着磁性が悪いという欠点を有していた。

(問題点を解決するための手段)

本発明者らはTM-B-Si(ここで、TMはMn, Fe, Co, Ni)合金を微粉末とし、R-TM-B系合金粉と混合し、焼結することにより高い磁石特性が得られることを見出した。さらに、TN-B系合金にSiを添加することにより、TM2B型相よりTM量の多い組成においても高い保磁力が得られることを見出したものである。

3

即ち、本発明は、TM_xBySiz(但し、TMはMn, Fe, Co, Niのうち少なくとも1種、0.5≤x≤0.9、0.1≤y≤0.5、0≤z≤0.2)から成る合金粉とRaTMbBcMd(但し、RはCe, Pr, Nd, Tb, Dyのうち少なくとも1種、TMはMn, Fe, Co, Niのうち少なくとも1種、MはTi, V, Cu, Ga, Zr, Nb, Mo, Hf, Ta, Wのうち少なくとも1種、0.12≤a≤0.4、0.4≤b≤0.8、0≤c≤0.25、0≤d≤0.08から成る合金粉を重量比で1:(0.03~0.5)の割合で混合し、焼結することにより得られる焼結磁石合金である。

TM-B-Si系合金は水アトマイズもしくはガスアトマイズした後、ボールミル・アトライターなどにより微粉砕を行い、サブミクロンもしくは数ミクロンの粉末を得る。R-TM-B-M系合金は、高周波溶解もしくはアーク溶解などにより作成し、ジョークラッシャー・ディスクミルな

4

どにより粗粉砕した後、ボールミルジェットミルなどにより微粉砕し、2~5μmの粉砕を得る。上記2種類の合金粉を重量比で1:(0.03~0.5)の割合で混合し、焼結し、熱処理する。

TM_xBySiz系合金において0.5≤x≤0.9とした理由は、0.5以下では飽和磁化しキュリー温度の低下が著しく、0.9以上では固有保磁が小さい。0.1≤y≤0.5とした理由は、0.1以下では固有保磁力と角型性が悪く、0.5以上では飽和路かの低下が著しい。0≤z≤0.2とした理由は、0.2以上では飽和磁化の低下が著しいためである。

R-TM-B-M系合金は焼結助剤及び保磁力発生に必要なピンニングサイトとして添加するものであり、添加量が少ない方が飽和磁化は大きい。が、少な過ぎると保磁力発生に寄与しない。このため、TM-B-Si系とR-TM-B-M系合金粉の混合比は重量比で1:(0.03~0.5)とした。RaTMbBcMd系合金で0.12≤a≤0.4とした理由は、aが0.12以下では固

5

6

有保磁力が小さく、0.4以上では微粉の酸化が著しく、取り扱いが困難となる。0.4 \leq b \leq 0.8とした理由は、0.4以下ではR量が多くなり、微粉が酸化し、0.8以上では固有保磁力が小さい。0 \leq c \leq 0.25とした理由は、cが0.25以上ではBリッチ相(RFe₄B₄)が多く生成し、固有保磁力が低下する。0 \leq d \leq 0.08とした理由は、dが0.08以上では異相が生成し、固有保磁力を低下させる。

【実施例】

以下、実施例により詳しく説明する。

【実施例1】

第1表に示すTM-B-Si系とR-TM-B-M系合金を溶解法により作成した。TM-B-Si系合金は水アトマイズ法により粉末化し、さらにアトライターにより粉砕し、平均粒径約0.8 μ mの微粉末を得た。R-TM-B-M系合金はディスクミルで粗粉砕した後、ジェットミルにより微粉砕し、平均粒径約3 μ mの微粉末を得た。両合金粉を第1表に示す割合で混合し、横磁場

第 1 表

No.	組 成 (a t %)		混 合 比	磁 石 特 性		
	A : T M - B - S i	B : R - T M - B - M	B / A (重量)	B r	i H c	(BH) _m
1	67Fe-33B	17Nd-76Fe-7B	0.1 / 1	11	0.5	3.0
2	67Fe-33B	17Nd-76Fe-7B	0.2 / 1	10.5	3.2	12.3
3	68Fe-32B	18Tb-76Fe-6B	0.15/1	9.6	7.8	20.3
4	52Fe-14Co-2Ni-32B	8Nd-9Tb-70Fe-6Mn-6B	0.2 / 1	10.0	7.0	21.0
5	52Fe-10Co-6Mn-32B	10Nd-8Dy-70Fe-6Mn-6B	0.25/1	9.3	5.0	16.8
6	60Fe-10Co-5Si-25B	9Nd-9Tb-70Fe-4Co-2V-6B	0.23/1	10.6	7.0	23.5
7	52Fe-10Co-6Ni-32B	12Nd-6Dy-74Fe-2Zr-6B	0.2 / 1	10.1	4.8	19.0
8	70Fe-30B	6Pr-12Tb-74Fe-2Nb-6B	0.25/1	9.8	7.8	20.5
9	70Fe-10Co-20B	19Nd-2Tb-50Fe-20Co-2Mo-7B	0.2 / 1	9.9	3.8	17.0
10	70Fe-10Si-20B	8Nd-10Dy-70Fe-3Ni-3W-6B	0.28/1	8.9	4.0	16.8
11	71Fe-9Co-20B	10Nd-10Tb-65Fe-5Co-3Ni-3Ta-4B	0.2 / 1	9.7	2.1	9.0
12	50Fe-10Co-40B	18Nd-74Fe-2Cu-6B	0.3 / 1	6.8	7.3	8.8
13	50Fe-5Co-5Ni-40B	26Nd-60Fe-5Ni-3Ga-6B	0.2 / 1	5.5	11.0	4.0
14	75Fe-5Co-5Si-15B	9Nd-9Tb-76Fe-7B	0.27/1	10.9	7.0	24.3
15	75Fe-25B	9Nd-6Dy-3Ce-70Fe-4Co-2Ti-7B	0.35/1	8.8	7.4	15.3

第 2 表

No.	組成 (at%) A: TM-B-Si	B: R-TM-B-M	混合比 B/A (重量)	150℃における 不可逆減磁率(%)
1	68Fe-32B	18Nd-76Fe-6B	0.15/1	72
2	55Fe-13Co-32B	9Nd-91b-76Fe-6B	0.2/1	3.1
3	75Fe-4Co-6Si-15B	20Tb-74Fe-6B	0.2/1	3.6
4	60Fe-8Ni-32B	18Dy-74Fe-8B	0.18/1	5.2
5	60Fe-40B	10Nd-6Dy-70Fe-8Co-8B	0.2/1	2.0
6	60Fe-10Co-30B	9Nd-9Dy-78Fe-4B	0.3/1	1.8

成形した後、1090～1160℃の範囲で焼結し、600～800℃の範囲で熱処理した。得られた結果を第1表に示す。固有保磁力が5kOe以上の試料について組織処理を行った結果、第1図に示す様な、 $(TMSi)_3B$ 、 TM_2B 結晶粒の周りに $R_2TM_{14}B$ 相が存在し、粒界相は R-TM 相であった。

〔実施例2〕

実施例1と同様な方法により、焼結磁石を作成し、熱安定性を測定した。得られた結果を第2表に示す。

〔発明の効果〕

本発明によれば、Nd-Fe-B系磁石の欠点であったキュリー点が低く、熱安定性が悪いことが改善される。また、希土類元素量が低減できるため、価格的に安く製造できる。

〔図面の簡単な説明〕

第1図は本発明の焼結磁石合金の金属組織の模式図である。

第 1 図

